

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                    2 0 0 3 年    3 月 2 8 日  
Date of Application:

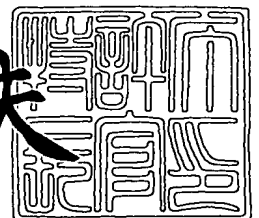
出 願 番 号                    特 願 2 0 0 3 - 0 9 1 8 1 0  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                    [ J P 2 0 0 3 - 0 9 1 8 1 0 ]

出      願      人                    ニチアス株式会社  
Applicant(s):

2 0 0 4 年    2 月    3 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 4 - 3 0 0 5 3 3 9

【書類名】 特許願

【整理番号】 P044525

【提出日】 平成15年 3月28日

【あて先】 特許庁長官殿

【発明者】

    【住所又は居所】 静岡県浜松市新都田 1 - 8 - 1   ニチアス株式会社浜松  
                                研究所内

    【氏名】 猪谷 秀幸

【発明者】

    【住所又は居所】 静岡県浜松市新都田 1 - 8 - 1   ニチアス株式会社浜松  
                                研究所内

    【氏名】 稲垣 剛

【発明者】

    【住所又は居所】 静岡県浜松市新都田 1 - 8 - 1   ニチアス株式会社浜松  
                                研究所内

    【氏名】 大村 睦

【特許出願人】

    【識別番号】 000110804

    【氏名又は名称】 ニチアス株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100105647

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 小栗 昌平

    【電話番号】 03-5561-3990

【選任した代理人】

    【識別番号】 100105474

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 本多 弘徳

    【電話番号】 03-5561-3990

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100108589

【弁理士】

【氏名又は名称】 市川 利光

【電話番号】 03-5561-3990

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100115107

【弁理士】

【氏名又は名称】 高松 猛

【電話番号】 03-5561-3990

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100090343

【弁理士】

【氏名又は名称】 栗宇 百合子

【電話番号】 03-5561-3990

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 092740

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0002933

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータの製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 樹脂と導電性フィラーとを含有する導電性樹脂組成物を成形して燃料電池用セパレータを製造する方法であって、

導電性樹脂組成物を加熱することなく加圧成形して平板状の予備成形体とし、得られた予備成形体を端面と平行に所定幅で切断して短冊状の予備成形体片とし、次いで各短冊状予備成形体片をそれぞれの切断面が上下面となるように水平方向に互いに接合して整列させた後、整列した状態で全体を樹脂の硬化温度以上の温度でセパレータ形状に加圧成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 2】 樹脂と導電性フィラーとを含有する導電性樹脂組成物を成形して燃料電池用セパレータを製造する方法であって、

導電性樹脂組成物を加熱することなく加圧成形して平板状の予備成形体とし、得られた予備成形体を端面と平行に所定幅で切断して短冊状の予備成形体片とし、次いで各短冊状予備成形体片を、得られる燃料電池用セパレータにおいて他の部位よりも低抵抗化したい部位に相当するものを除いて、それぞれの切断面が上下面となるように水平方向に互いに接合して整列させた後、整列した状態で全体を樹脂の硬化温度以上の温度でセパレータ形状に加圧成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 3】 導電性フィラーが膨張黒鉛、鱗状導電性材料、平板状導電性材料または繊維状導電性材料であることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、樹脂と導電フィラーとを含有する導電性樹脂組成物を成形して燃料電池用セパレータを製造する方法に関する。

【0 0 0 2】

**【従来の技術】**

近年、燃料の有する化学エネルギーを電気エネルギーに直接変換する燃料電池に関心が高まっている。一般に燃料電池は、電解質を含有するマトリックスを挟んで、電極板が配置され、さらにその外側に燃料電池用セパレータが配置された単位セルを多数積層した形になっている。

**【0003】**

図3は一般的な燃料電池用セパレータ1の一例を示す斜視図であるが、平板部11の両面に所定間隔で複数の隔壁12を立設して形成されており、燃料電池とするには、隔壁12の突出方向（図中、上下方向）に沿って多数の燃料電池用セパレータ1を積層する。そして、この積層により、隣接する一对の隔壁12によりチャンネル13が形成され、燃料電池用セパレータ1の一方の面には燃料が、他方の面には気体酸化剤等が流通する。そのため、燃料電池用セパレータ1には両者が混合しないように気体不透過性に優れることが必要であり、チャンネル13を形成する隔壁12には高い寸法精度が要求される。

**【0004】**

一方で、燃料電池用セパレータ1は、カーボンブラックや黒鉛等の導電性フィラーと、エポキシ樹脂やフェノール樹脂等の樹脂とを混練した導電性樹脂組成物を所定形状に圧縮成形して製造するのが一般的になっている。しかし、導電性フィラーは完全な球形でないため、得られる燃料電池用セパレータ1では導電性フィラーが均一に分散しにくいという問題がある。例えば、黒鉛は鱗片状であるため、得られる燃料電池用セパレータ1では、図3において水平方向（符号H方向）に沿って黒鉛が層状に配向しやすく、厚さ方向（符号V方向）の導電性が悪くなる。

**【0005】**

このような導電性フィラーの配向の問題に対して、導電性フィラーの充填量を高めることも行われているが、導電性樹脂組成物の流動性が低下して成形性が悪くなり、寸法精度の低下を招き易くなる。また、成形に際して多方向から加圧する方法も提案されている（特許文献1参照）。しかし、この方法では、特殊な成形金型や成形装置を必要とし、成形工程が複雑となるという不具合がある。

**【特許文献 1】**

特開平 8 - 1 8 0 8 9 2 号公報

**【0 0 0 6】****【発明が解決しようとする課題】**

本発明はこのような状況に鑑みてなされたものであり、特別な成形金型や成形装置を用いることなく導電性フィラーの配向を均一化でき、導電性に優れた燃料電池用セパレータを提供することを目的とする。

**【0 0 0 7】****【課題を解決するための手段】**

上記の目的を達成するために本発明は、樹脂と導電性フィラーとを含有する導電性樹脂組成物を成形して燃料電池用セパレータを製造する方法であって、導電性樹脂組成物を加熱することなく加圧成形して平板状の予備成形体とし、得られた予備成形体を端面と平行に所定幅で切断して短冊状の予備成形体片とし、次いで各短冊状予備成形体片をそれぞれの切断面が上下面となるように水平方向に互いに接合して整列させた後、整列した状態で全体を樹脂の硬化温度以上の温度でセパレータ形状に加圧成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法を提供する。

**【0 0 0 8】**

また、本発明は、樹脂と導電性フィラーとを含有する導電性樹脂組成物を成形して燃料電池用セパレータを製造する方法であって、導電性樹脂組成物を加熱することなく加圧成形して平板状の予備成形体とし、得られた予備成形体を端面と平行に所定幅で切断して短冊状の予備成形体片とし、次いで各短冊状予備成形体片を、得られる燃料電池用セパレータにおいて他の部位よりも低抵抗化したい部位に相当するものを除いて、それぞれの切断面が上下面となるように水平方向に互いに接合して整列させた後、整列した状態で全体を樹脂の硬化温度以上の温度でセパレータ形状に加圧成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法を提供する。

**【0 0 0 9】**

上記の各製造方法は、導電性フィラーとして膨張黒鉛、鱗状導電性材料、平板

状導電性材料または繊維状導電性材料を用いるときに好適であり、導電性の改善効果が特に顕著となる。

#### 【0 0 1 0】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明に関して詳細に説明する。

#### 【0 0 1 1】

図 1 は、本発明の燃料電池用セパレータの製造方法を説明するための工程図である。先ず、従来と同様にして、樹脂と導電性フィラーとを十分に混練して導電性樹脂組成物を調製する。導電性フィラーは従来より燃料電池用セパレータに用いられているものを適宜選択することができるが、本発明においては、後述する工程を経ることから、膨張黒鉛の他、鱗片状や平板状、繊維状等の加圧成形したときに加圧方向と直交する方向に層状に配向する性質を持つ導電性材料が特に好適である。また、樹脂にも制限が無く、各種の熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂を用いることができる。導電性フィラーの配合量にも制限がないが、燃料電池用セパレータとしての実用的な導電性を確保するには、導電性樹脂組成物全量の 4 0 重量%以上とする。一方、樹脂の配合量は燃料電池用セパレータとしてのシール性、形状保持性、更には成形時の流動性を考慮して 2 0 重量%以上とする。即ち、導電性樹脂組成物において、導電性フィラーは 4 0 ～ 8 0 重量%、樹脂は 2 0 ～ 6 0 重量%の割合で配合される。

#### 【0 0 1 2】

導電性樹脂組成物には、必要に応じて、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、ファーネスブラック等のカーボンブラックを添加してもよい。これらカーボンブラックは、層状に配向する導電性材料の層間に入り込んで導電パスを形成して導電性フィラーとして機能するとともに、燃料電池用セパレータとしたときの機械的強度を高める補強剤としても機能する。カーボンブラックの添加量は、導電パスの形成及び増強効果、更には成形性を確保することを考慮すると、導電性フィラー：カーボンブラック＝1：1～1：4 とすることが望ましい。

#### 【0 0 1 3】

そして、工程（A）に示すように、導電性樹脂組成物を平板状のキャビティを

有する金型に充填し、熱を加えることなく加圧して平板状の予備成形体 1 a を得る。加圧条件は、50～100 MPa が適当である。この成形体 1 a は、従来と同様に、導電性フィラーは平面部 10 と平行（符号 H 方向）に層状に配向している。

#### 【0014】

次いで、工程（B）に示すように、予備成形体 1 a を端面 20 に平行に所定間隔で切断して短冊状の予備成形体片 1 b を得る。

#### 【0015】

次いで、工程（C）に示すように、各予備成形体片 1 b を横転させてそれぞれの切断面（端面 20 に平行な面）が上方及び下方を向くようにした後、当初の平面部 10 が接合し合うように水平方向に整列させる。この横転より、各予備成形体片 1 b において、導電性フィラーは当初の厚さ方向（工程（A）の符号 V 方向）に層状に配向する。

#### 【0016】

そして、工程（D）に示すように、この整列状態を維持したまま、従来と同様にして燃料電池用セパレータ用の成形金型に装着し、樹脂の硬化温度にて加圧することにより燃料電池用セパレータ 1 が得られる。この加熱成形により、符号 V 方向に配向していた導電性フィラーは再び符号 H 方向に配向され、全体として厚み方向及び面方向ともにほぼ均等に導電性フィラーが分散し、導電性に優れた燃料電池用セパレータ 1 が得られる。具体的には、後述される実施例にも示すように、従来の製造方法で成形した場合と比較すると、抵抗値が半分程度にまで改善された燃料電池用セパレータを成形することが可能となる。

#### 【0017】

本発明の製造方法に従えば、上記の工程（C）における短冊状予備成形体片 1 b の配列の仕方により燃料電池用セパレータ中の導電性フィラーを任意の方向に配向制御でき、例えばある短冊状予備成形体片 1 b を横転させないで整列させると、燃料電池用セパレータの対応箇所のみが他の部位に比べて低導電性となる。このように、本発明の製造方法によれば、これまでには無かった新しい燃料電池のスタック方法の可能性も出てくる。



## 【0018】

## 【実施例】

以下に実施例及び比較例を挙げて本発明を更に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

## 【0019】

(実施例 1～3、比較例 1～3)

下記の導電性材料及び樹脂を用いて、表 1 に示す配合割合にて混合し、下記に示す方法に従って試料を作製した。

## 【0020】

## &lt;導電性材料&gt;

膨張黒鉛 (粒径約 $400\mu\text{m}$ ～ $800\mu\text{m}$ )

カーボンブラック (アセチレンブラック: 粒径約 $5\mu\text{m}$ ～ $10\mu\text{m}$ )

## &lt;樹脂&gt;

熱硬化性エポキシ樹脂

熱可塑性ポリメチルペンテン

熱可塑性液晶ポリマー

## &lt;製造方法&gt;

表 1 の実施例 1 では乾式混合、実施例 2, 3 では溶融混合にて混練を行い、それぞれ混練物を得た。そして、実施例 1 の混練物を常温、圧力 20 MPa で板状の予備成形体を成形した。次いで、予備成形体を 5 mm 間隔で短冊状に切断し、切断面が上下面となるように金型内にセットし、所定温度、圧力 100 MPa で加圧してシート状の成形体からなる試験片を得た。また、実施例 2, 3 の混練物は予備成形体とするときの圧力を 100 MPa としたこと以外は実施例 1 と同様にして試験片を得た。一方、比較例 1～3 については、所定温度、圧力 100 MPa で加圧してシート状に成形して試験片とした。

## 【0021】

## &lt;抵抗測定&gt;

上記で作製した試験片について、図 2 に示す測定装置を用いて抵抗値を測定した。図示される測定装置は、金メッキした一対の電極 50 の間に、カーボンペー

パー４０を介して試験片３０を挟み込み、電源６０から一定電流を流し、カーボンペーパー４０間の電圧を電流計７０で測定する構成となっている。測定結果を表１に併記するが、抵抗値はカーボンペーパー４０と試験片３０との接触抵抗及び試験片３０の体積抵抗を含んだ値である。

# 【００２２】

【表１】

表 1

	実施例１	比較例１	実施例２	比較例２	実施例３	比較例３
エポキシ樹脂	30	30	-	-	-	-
PMP	-	-	40	40	-	-
LCP	-	-	-	-	50	50
膨張黒鉛	60	60	50	50	40	40
カーボンブラック	10	10	10	10	10	10
製造方法	A→B	B	A→B	B	A→B	B
抵抗値( $m\Omega \cdot cm^2$ )	20	40	30	50	50	80

注１）配合は重量％

注２）製造方法においてＡは配向制御、Ｂは圧縮成形を示す。

# 【００２３】

表１に示される比較例１～３の試験片は従来の方法で成形したものである。それに対して本発明に従って成形を行った実施例１～３の試験片は抵抗値が比較例の試験片に比べて半分程度にまで下がっていること分かる。

# 【００２４】

## 【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、導電性フィラーの配向を均一化して導電性に優れた燃料電池用セパレータが得られる。しかも、複雑な成形型を必要とすることもなく、成形工程も従来と同様に行うことができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図１】

本発明の燃料電池用セパレータの製造方法を説明するための工程図である。

【図 2】

実施例で用いた測定装置を示す概略構成図である。

【図 3】

燃料電池用セパレータの一例を示す斜視図である。

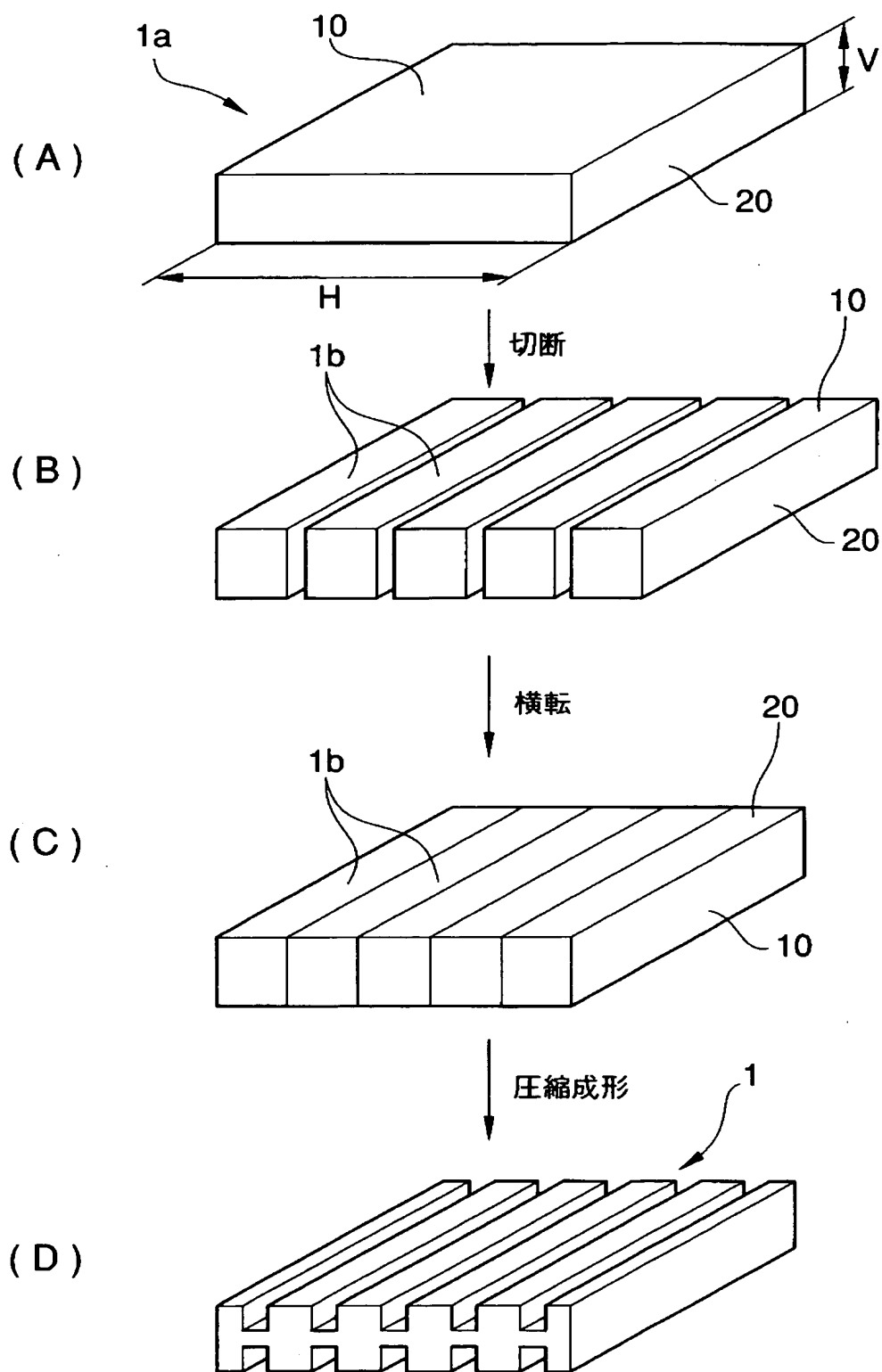
【符号の説明】

- 1 燃料電池用セパレータ
- 1 a 予備成形体
- 1 b 短冊状予備成形体片
- 1 0 端面
- 2 0 平面部
- 3 0 試験片
- 4 0 カーボンペーパー
- 5 0 電極
- 6 0 電源
- 7 0 電流計

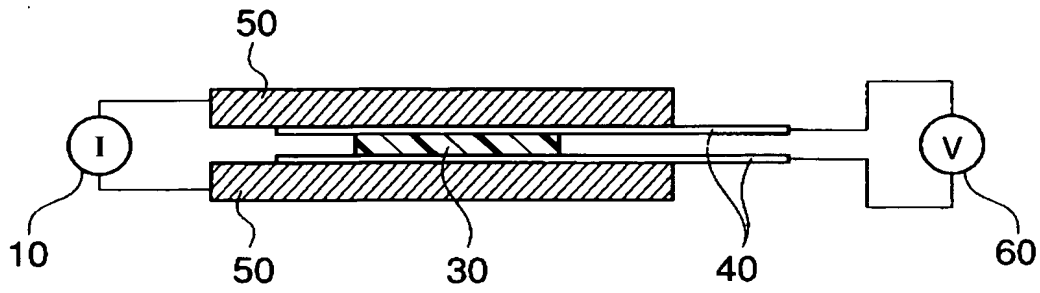
【書類名】

図面

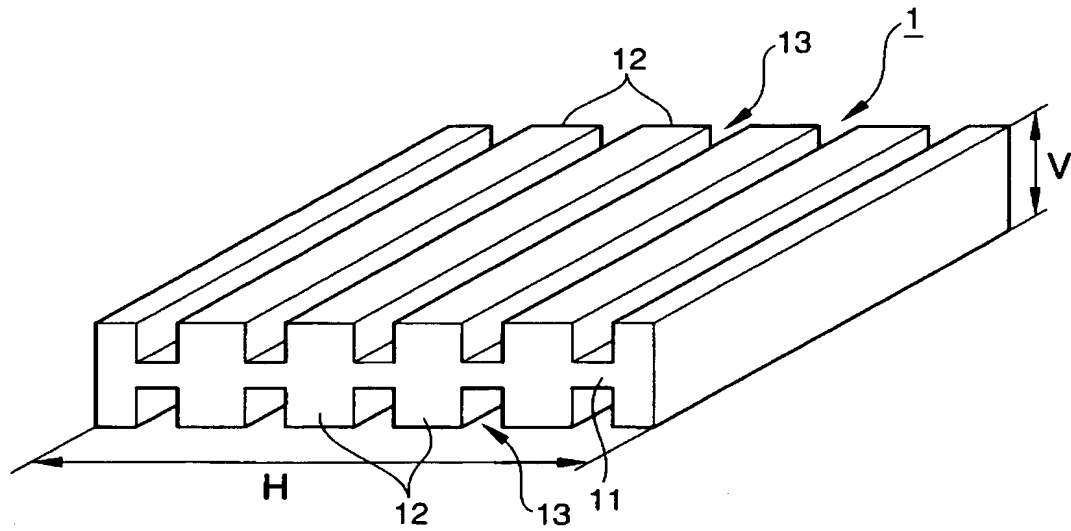
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 特別な成形金型や成形装置を用いることなく導電性フィラーの配向を均一化でき、導電性に優れた燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 樹脂と導電性フィラーとを含有する導電性樹脂組成物を成形して燃料電池用セパレータを製造する方法であって、導電性樹脂組成物を加熱することなく加圧成形して平板状の予備成形体とし、得られた予備成形体を端面と平行に所定幅で切断して短冊状の予備成形体片とし、次いで各短冊状予備成形体片をそれぞれの切断面が上下面となるように水平方向に互いに接合して整列させた後、整列した状態で全体を樹脂の硬化温度以上の温度でセパレータ形状に加圧成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【選択図】 図1

特願 2 0 0 3 - 0 9 1 8 1 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 1 1 0 8 0 4 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 2 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都港区芝大門 1 丁目 1 番 2 6 号
氏 名	ニチアス株式会社